

PAT-NO: JP401173514A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 01173514 A

TITLE: HEAT CONDUCTING ELECTRIC INSULATING SHEET AND  
ITS  
MANUFACTURE

PUBN-DATE: July 10, 1989

INVENTOR-INFORMATION:

NAME

KASHIDA, SHU

TSUCHIDA, TOMIYOSHI

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME

COUNTRY

SHIN ETSU CHEM CO LTD

N/A

APPL-NO: JP62331704

APPL-DATE: December 25, 1987

INT-CL (IPC): H01B017/60

US-CL-CURRENT: 174/209

ABSTRACT:

PURPOSE: To obtain a **heat conducting** electric insulating sheet with high **heat conductivity** by forming **silicone** rubber layers containing a different **heat conducting** inorganic filler material on one **face or both faces** of a mesh-shaped electric insulator filling-processed with a **silicone** rubber filling processing agent containing a **heat conducting** inorganic filler material.

CONSTITUTION: Filling processing is applied to a mesh-shaped electric

insulator with a **silicone** rubber filling processing agent 2 containing a **heat conducting** inorganic filler material, then a **silicone** rubber layer 4 containing a **heat conducting** inorganic filler material different from the above on one **face or both faces** of an unvulcanized mesh-shaped electric insulator filling layer 3, and the mesh-shaped electric insulator filling layer 3 and the **silicone** rubber layer 4 are concurrently vulcanized. The silicone rubber layer 4 is satisfactorily stuck to the mesh-shaped electric insulator filling layer face, and an electric insulating sheet with high heat conductivity can be efficiently manufactured.

COPYRIGHT: (C)1989,JPO&Japio

## ⑫ 公開特許公報(A)

平1-173514

⑨ Int.Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 平成1年(1989)7月10日

H 01 B 17/60

N-8832-5E

審査請求 未請求 発明の数 2 (全6頁)

⑭ 発明の名称 熱伝導性電気絶縁シート及びその製造方法

⑯ 特 願 昭62-331704

⑰ 出 願 昭62(1987)12月25日

⑱ 発 明 者 梶 田 周 群馬県安中市磯部2丁目13番1号 信越化学工業株式会社

シリコン電子材料技術研究所内

⑲ 発 明 者 土 田 富 義 群馬県安中市磯部2丁目13番1号 信越化学工業株式会社

シリコン電子材料技術研究所内

⑳ 出 願 人 信越化学工業株式会社 東京都千代田区大手町2丁目6番1号

㉑ 代 理 人 弁理士 小島 隆司

明 和 書

## 1. 発明の名称

熱伝導性電気絶縁シート及びその製造方法

## 2. 特許請求の範囲

1. 熱伝導性無機充填剤を含有したシリコンゴム目止め処理剤で目止め加工した網目状電気絶縁体の片面又は両面に、上記充填剤と異なる熱伝導性無機充填剤を含有したシリコンゴム層を形成してなることを特徴とする熱伝導性電気絶縁シート。

2. 熱伝導性無機充填剤を含有したシリコンゴム目止め処理剤を使用して網目状電気絶縁体に目止め加工を施した後、未加硫状態のまま該網目状電気絶縁体の片面又は両面に上記充填剤と異なる熱伝導性無機充填剤を含有したシリコンゴム層を形成し、次いで上記網目状電気絶縁体と上記シリコンゴム層とを同時に加硫して、熱伝導性電気絶縁シートを得ることを特徴とする熱伝導性電気絶縁シートの製造方法。

## 3. 発明の詳細な説明

産業上の利用分野

本発明は、発熱性電子部品を放熱フィンや金属製放熱板に取り付ける際に用いる絶縁性放熱シート等として好適に利用される安価でかつ熱伝導性に優れた熱伝導性電気絶縁シート及びその製造方法に関する。

従来の技術及び発明が解決しようとする問題点

従来、パワートランジスタ、サイリスタ、整流器或いはトランス等の発熱性電子部品は、使用時に熱を発生するため、これら発熱性部品からの熱を放熱フィンや金属放熱板により放熱することが行なわれているが、この場合これらの間に熱伝導性電気絶縁体をシート状に介在させることが必要である。

この熱伝導性電気絶縁シートとしては、シリコンゴムに石英、アルミナ、窒化硼素等の熱伝導性無機充填剤を添加したシリコンゴム組成物をシート状に成形加硫したものが主に使われている。

また、熱伝導性電気絶縁シートの機械的強度の

向上を目的として網目状絶縁体を用いることも行なわれており、網目状絶縁体の片面又は両面にシリコーンゴム層を形成した熱伝導性電気絶縁シートが知られている。この網目状絶縁体材料としては、絶縁性、強度、価格の点から最適なガラスクロスが多く利用されており、このガラスクロスで代表される網目状絶縁体面にシリコーンゴム層を積層する方法としては、カレンダーロールに網目状絶縁体を連続的に供給し、その上にシリコーンゴム組成物を分出しする方法（以下、カレンダー加工法と称す）と、網目状絶縁体の上に溶剤等で溶解したシリコーンゴム組成物をコーティングする方法（以下、コーティング法と称す）がある。

しかし、上記カレンダー加工法は、工程中に網目状絶縁体に引張りや引裂き等の応力がかかるため、網目状絶縁体の破損によるトラブルが発生し易く、またコーティング法はシリコーンゴム組成物溶解液が網目状絶縁体の網目から溶出して作業上好ましくないという問題点がある。

そこで、これら網目状絶縁体の破損や溶解液溶

填剤と、この目止め加工された網目状電気絶縁体の片面又は両面に積層されるシリコーンゴム層の熱伝導性無機充填剤とを互に異なるものにした場合、これら両熱伝導性無機充填剤として互に同一のものを使用した場合に比較して熱抵抗が低くなり、高い熱伝導性が得られることを知見した。

更にこの場合、熱伝導性無機充填剤を含有したシリコーンゴム目止め処理剤で目止め加工された未加硫の網目状電気絶縁体と、その片面又は両面に積層される上記熱伝導性無機充填剤と異なる熱伝導性無機充填剤を含有するシリコーンゴム層とを同時加硫することにより、上記の目止め加工された網目状電気絶縁体とシリコーンゴム層との接着性が向上することを知見し、本発明をなすに至った。

従って、本発明は、熱伝導性無機充填剤を含有したシリコーンゴム目止め処理剤で目止め加工した網目状電気絶縁体の片面又は両面に、上記充填剤と異なる熱伝導性無機充填剤を含有したシリコーンゴム層を形成してなることを特徴とする熱伝

出といった問題を解決する新しい方法として、予め網目状絶縁体材料を目止め剤溶液中に浸漬した後圧着して目止め加工を施し、次いで上記カレンダー加工法又はコーティング法でこの目止め加工された網目状絶縁体面にシリコーンゴム層を形成する方法が採用されている。この場合、目止め剤としては、それ自身に絶縁性及び熱伝導性があり、しかもシリコーンゴム層との接着性に優れたものが好適であり、通常、シリコーンゴム層の原料とそれぞれ同種のシリコーンゴム及び熱伝導性無機充填剤を主成分としたものが用いられている。

しかしながら、上記方法で得られる熱伝導性電気絶縁シートの熱伝導性はいずれも十分とは言えず、更に熱伝導性に優れた熱伝導性電気絶縁シート及びその製造方法の開発が望まれる。

#### 問題点を解決するための手段及び作用

本発明者らは上記事情に鑑み、熱伝導性の高い熱伝導性電気絶縁シートを得るため鋭意検討を重ねた結果、網目状電気絶縁体の目止め加工に用いるシリコーンゴム目止め処理剤の熱伝導性無機充

導性電気絶縁シート、及び熱伝導性無機充填剤を含有したシリコーンゴム目止め処理剤を使用して網目状電気絶縁体に目止め加工を施した後、未加硫状態のまま該網目状電気絶縁体の片面又は両面に上記充填剤と異なる熱伝導性無機充填剤を含有したシリコーンゴム層を形成し、次いで上記網目状電気絶縁体と上記シリコーンゴム層とを同時に加硫して、熱伝導性電気絶縁シートを得ることを特徴とする熱伝導性電気絶縁シートの製造方法を提供する。

以下、本発明につき更に詳しく説明する。

本発明に係る熱伝導性電気絶縁シート1は、第1、2図に示したように、熱伝導性無機充填剤を含有してなるシリコーンゴム目止め処理剤2で目止め加工した網目状電気絶縁体3の片面（第1図）又は両面（第2図）に、上記充填剤と異なる熱伝導性無機充填剤を含有してなるシリコーンゴム層4を形成したものである。

ここで、網目状電気絶縁体は、ガラスクロス、高分子材料からなる各種クロスなど種々の電気絶

縁性を有する材料で形成し得るが、特に強度の点からガラスクロスを使用することが好ましい。

更に、上記電気絶縁材料を用いて網目状構造を有する電気絶縁体を形成する場合、使用目的等に応じて網目間隔や厚みを調整し得るが、網目状電気絶縁体の厚みは0.2mm以下とすることが望ましく、0.2mmより厚いと熱伝導性が低下する場合がある。

また、上記電気絶縁体の目止め加工に用いるシリコーンゴム目止め処理剤及びシリコーンゴム層に用いるシリコーンゴム成分としては、加硫可能なものであれば特に制限はなく、加硫方法に応じた適宜な成分を使用し得、例えば有機過酸化物を使用して加硫する場合はジメチルポリシロキサン又はビニル基を含有するジメチルポリシロキサンが用いられ、SiH基を有するジメチルハイドロジェンポリシロキサンを架橋剤とし、白金系化合物を触媒として使用して付加反応により加硫する場合はビニル基を2個以上有するジメチルポリシロキサンが好適に用いられる。

と共に、ゴム弾性が減少して発熱性電子部品の放熱体との接触が不十分となり、その結果熱伝導効果が減少する場合がある。

また、シリコーンゴム層を形成するためのシリコーンゴム組成物には、その他の成分として所定量の加硫剤もしくは架橋剤及び反応触媒が配合され、加えて必要に応じてシリカ等の補強性フィラー、加工助剤、難燃化剤、硬化制御剤、密着向上剤、着色防止剤等を添加することができる。

而して、本発明の熱伝導性電気絶縁シートは、上記網目状電気絶縁体の目止め加工に使用するシリコーンゴム目止め処理剤の第1の熱伝導性無機充填剤と上記シリコーンゴム層の第2の熱伝導性無機充填剤とで互に異なる種類の熱伝導性無機充填剤を用いる。

この場合、第1又は第2の充填剤として2種以上の充填剤を使用し、第2又は第1の充填剤が1種である場合、後者の第2又は第1の充填剤は前者の第1又は第2の2種以上の充填剤の全てとその種類が相違するもので、また第1及び第2の充

更に、電気絶縁体の目止め処理剤及びシリコーンゴム層に用いる熱伝導性無機充填剤には熱伝導性が良好な無機粉体が好適に使用され、具体的にはアルミナ、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、炭化ケイ素、窒化アルミニウム、窒化硼素、黒鉛、石英等の1種を単独で又は2種以上を混合して用いることができるが、特に価格や性能の点から石英、アルミナ、窒化硼素等が好適に使用される。

なお、熱伝導性無機充填剤の配合比は、目止め処理剤及びシリコーンゴム層それぞれに応じて適宜選定されるが、好ましい配合比は熱伝導性無機充填剤の種類によってそれぞれ異なり、シリコーンゴム成分100部(重量部、以下同様)に対する各熱伝導性無機充填剤の好ましい配合比は、石英やアルミナ、窒化アルミニウムの場合は300～1200部であり、窒化硼素の場合は100～500部である。熱伝導性無機充填剤の配合比が上記範囲より少ないと熱伝導性が不十分になる恐れがあり、逆に多過ぎると得られるシリコーンゴム成形体の機械的強度及び電気絶縁性が低下する

充填剤としてそれぞれ2種以上のものを使用する場合においても、充填剤の全ての種類が相違するものを使用する。

なお、第1の充填剤と第2の充填剤とは、その粒径や配合量は同じであっても相違していてもよい。

また、シリコーンゴム層を第2図のように目止め加工された電気絶縁体の両面に2層設ける場合、これら両シリコーンゴム層の充填剤は互に同じであっても異なってもよく、その粒径や配合量、更にシリコーンゴム成分なども同一又は相違するものとして選択し得るが、製造性の点からは同じシリコーンゴム組成物をもって両シリコーンゴム層を形成することが好ましい。

なおまた、電気絶縁体の目止め処理剤中のシリコーンゴム成分とシリコーンゴム層のシリコーンゴム成分とは互に異なるものを使用することもできるが、同じシリコーンゴム成分を用いることが目止め加工された電気絶縁体とシリコーンゴム層との接着性の点から推奨される。

本発明の熱伝導性電気絶縁シートを製造する場合は、熱伝導性無機充填剤を含有してなるシリコーンゴム目止め処理剤を使用して網目状電気絶縁体に目止め加工を施した後、未加硫状態の網目状電気絶縁体目止め層の片面又は両面に上と異なる熱伝導性無機充填剤を含有してなるシリコーンゴム層を形成し、次いで網目状電気絶縁体目止め層とシリコーンゴム層とを同時に加硫することが好ましい。

ここで、網目状電気絶縁体の目止めは、目止め処理剤をトルエン、キシレン、酢酸エチル、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン等の有機溶剤に溶解分散し、この処理液中に網目状電気絶縁体を浸漬後圧着する通常の方法で行なうことができる。

また、シリコーンゴム層を積層する方法は、上述のコーティング法、カレンダー加工法等の通常の方法を採用することができ、シートの種類などに応じて好適な方法で行なうことができる。なお、シリコーンゴム層をコーティング法で積層する場合

は、目止め処理法と同様にトルエン等の有機溶剤を用いてシリコーン組成物を溶解し、適宜な濃度のコーティング用液を調製することができる。

なお、本発明においては、上述したように電気絶縁体目止め層とシリコーンゴム層とで互に異なる熱伝導性無機充填剤を使用するものであるが、この場合、高価な窒化硼素を目止め層に用い、安価なアルミナをシリコーンゴム層に用いると経済的である。また、シリコーンゴム層の充填剤は積層法に応じて選択するのが有利であり、例えば、高価ではあるが優れた熱伝導性を有する窒化硼素は、ロール混練等のシェアを受けることにより分子構造が変化し、その結果、熱伝導性が低下する場合があるので、コーティング法に用いることが望ましく、また、安価で比較的良好な熱伝導性を有するアルミナ等においては、カレンダー加工法やコーティング法の両方に使用できる。

本発明製造方法においては、網目状電気絶縁体に目止め加工を施した後、上述したようにシリコーンゴム目止め処理剤を加硫しないまま、かかる

網目状電気絶縁体面にシリコーンゴム層を積層し、次いでこれらを同時加硫するものであり、この場合、加硫条件はシリコーンゴム成分や加硫剤の種類によって異なるが、120～200℃で5～30分間程度加熱するという条件が好適に採用される。

#### 発明の効果

以上説明したように、本発明の熱伝導性電気絶縁シートは、熱伝導性が高く、発熱性電子部品と放熱フィンや金属放熱板との間に介在させるなどして幅広く利用することができる。更に、本発明製造方法によれば、網目状電気絶縁体目止め層面にシリコーンゴム層が良好に接合し、上記熱伝導性の高い電気絶縁シートを効率良く、経済的に有利に製造することができる。

以下、実施例と比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記実施例に制限されるものではない。

なお、下記の例において、部は重量部を示す。

〔実施例、比較例〕

ビニル基を0.05モル%含有するゴム状ジメチルポリシロキサン100部と加硫剤として2,4-ジクロロベンゾイルパーオキサイド2.0部とからなるシリコーンゴムと、窒化硼素及びアルミナ、窒化アルミニウム、石英を用いて、第1表に示す組成の組成物I～Vを調製した。

第 1 表

組 成 部 品		組 成 物				
		I	II	III	IV	V
	シリコーンゴム	100	100	100	100	100
	窒化硼素	150	—	—	—	100
	アルミナ	—	1000	600	600	—
	窒化アルミニウム	—	—	200	—	100
	石英	—	—	—	300	—

次いで、第1表に示す組成物100部をトルエン100部に溶解したものをそれぞれ処理液として使用して以下に示す方法でガラスクロスに目止

め処理を行なった後、コーティング法又はカレンダーロールによるシート分出し法により第2図に示す如きガラスクロス目止め層の両面にそれぞれシリコンゴム層を形成した熱伝導性シリコンゴムシートを得た。

#### 〈目止め処理方法〉

厚み0.1mmのガラスクロスを処理液に第2表の通り浸漬して2本ロールで圧着した後、70℃で10分間乾燥して溶剤を除去し、シリコンゴムが未加硫状態の目止め処理を行なった。目止め量は55g/m<sup>2</sup>であった。

#### 〈コーティング方法〉

処理液を第2表の通りバーコーターにて未加硫ガラスクロス目止め層の一面にコーティングし、60℃の熱風赤外線ドライヤーで溶剤を除去した。次に、目止め層の他面も同様にコーティング処理し、ガラスクロス目止め層の両面にシリコンゴム層を形成した。

これを170℃で15分間熱加硫して、熱伝導性シリコンゴムシートを得た。

#### 〈カレンダーロールによるシート分出し方法〉

第1表の組成物を第2表の通り3本カレンダーロールにて未加硫ガラスクロス目止め層の一面上に分出しを行なった。

次に、目止め層の他面も同様に分出しを行ない、ガラスクロス目止め層の両面にシリコンゴム層を形成した。

これを170℃で15分間熱加硫して、熱伝導性シリコンゴムシートを得た。

得られた熱伝導性シリコンゴムシートの厚さ、熱抵抗、ガラスクロスとシリコンゴム層との密着性を測定した。なお、熱抵抗及び密着性の測定は以下の方法で行なった。

#### 〈熱抵抗測定方法〉

測定用シートをパワートランジスタ(2SD217, TO-3型、日本電気(株)社製)と放熱器(YWA-L120型、オーエス(株)社製)の間に装着し、5kgのトルクで固定した。これに直流電流4A、電圧7Vを印加し、20分経過後、放熱器とトランジスタとの間の温度が平衡状態に達

したときに両者の温度差を測定し、印加した消費電力から熱抵抗値(℃/W)を求めた。

#### 〈ガラスクロスとシリコンゴム層との密着性測定方法〉

加硫後の熱伝導性シリコンゴムシートのガラスクロス部分とシリコンゴム層部分の間を両手で引張り、密着の程度を調べた。なお、両手で引張った時に両部分が簡単に剥れる場合を不良とし、その他の場合を良好と判定した。以上の結果を第2表に示す。

表 2

	処理液の組成		熱伝導性シリコンゴムの厚み (mm)	熱抵抗 (℃/W)	ガラスクロスとシリコン ゴム層との密着性	
	目止め用 組成物	コーティング 用組成物			良	不良
実施例1	I	II	0.44	0.90	良	不良
" 2	I	I	0.45	0.85	"	"
" 3	I	I	0.44	0.90	"	"
" 4	I	I	0.44	0.95	"	"
" 5	II	I	0.45	0.45	"	"
" 6	II	V	0.46	0.50	"	"
" 7	V	I	0.45	0.80	"	"
" 8	V	I	0.45	0.95	"	"
比較例1	II	II	0.45	1.20	"	"
" 2	II	I	0.46	1.15	"	"
" 3	I	II	0.44	0.90	やや良	不良

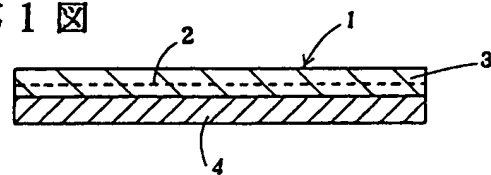
比較例3\*: 組成物Iを用いて目止め処理後、170℃で10分間目止め処理液を加硫し、  
次いで組成物IIをコーティングし、組成物IIを加硫した。

4. 図面の簡単な説明

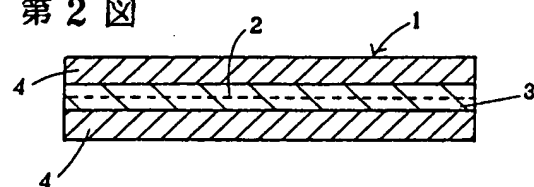
第1図及び第2図はそれぞれ本発明の一実施例に係る熱伝導性電気絶縁シートを示す断面図である。

- 1…熱伝導性電気絶縁シート、
- 2…目止め処理剤、
- 3…網目状電気絶縁体、
- 4…シリコーンゴム層。

第1図



第2図



出願人 信越化学工業株式会社  
代理人 弁理士 小島隆司



PTO 06-3197

CY=JA DATE=19890710 KIND=A  
PN=01-173514

HEAT CONDUCTING ELECTRIC INSULATING SHEET AND ITS MANUFACTURE  
[Netsudendosei denki zetsuenshiito oyobi soho seizohoho]

Shu Kashida, et al.

UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE  
Washington, D.C. March 2006

Translated by: FLS, Inc.

PUBLICATION COUNTRY	(19):	JP
DOCUMENT KIND	(12):	A
	(13):	PUBLISHED UNEXAMINED PATENT APPLICATION (Kokai)
PUBLICATION DATE	(43):	19890710 [WITHOUT GRANT]
PUBLICATION DATE	(45):	19890710 [WITH GRANT]
APPLICATION NUMBER	(21):	62-331704
APPLICATION DATE	(22):	19871225
PRIORITY DATE	(32):	
ADDITION TO	(61):	
INTERNATIONAL CLASSIFICATION	(51):	H01B 17/60
DOMESTIC CLASSIFICATION	(52):	
PRIORITY COUNTRY	(33):	
PRIORITY NUMBER	(31):	
PRIORITY DATE	(32):	
INVENTOR	(72):	KASHIDA, SHU; TSUCHIDA, TOMIYOSHI.
APPLICANT	(71):	SHIN ETSU CHEM CO LTD.
TITLE	(54):	HEAT CONDUCTING ELECTRIC INSULATING SHEET AND ITS MANUFACTURE
FOREIGN TITLE	[54A]:	Netsudendosei denki zetsuenshiito oyobi soho seizohoho

## 1. Name of this Invention

HEAT CONDUCTING ELECTRIC INSULATING SHEET AND ITS MANUFACTURE

## 2. Claim(s)

[1] Heat conducting electric insulating sheet comprising a silicone rubber layers containing a heat conducting inorganic filler material formed on one face or both faces of a mesh-shaped electric insulator filling-processed with a silicone rubber filling processing agent containing a heat conducting inorganic filler material which is different from the heat conducting inorganic filler material of the silicone rubber layers.

[2] Production method of heat conducting electric insulating sheet comprising a step of applying filling processing to a mesh-shaped electric insulator with a silicone rubber filling processing agent containing a heat conducting inorganic filler material, a step of forming a silicone rubber layer containing a heat conducting inorganic filler material different from the above on one face or both faces of an unvulcanized mesh-shaped electric insulator filling layer, and a step of concurrently vulcanizing the mesh-shaped electric insulator filling layer and the silicone rubber layer.

---

\* Numbers in the margin indicate pagination in the foreign text.

### 3. Detailed Explanation of this Invention

#### [Industrial Field]

This invention pertains to an inexpensive heat conducting electric insulating sheet having excellent heat conductivity effectively used as an insulating heat-radiating sheet, etc. applied when a heat-generating electronic part is mounted onto a heat-discharging fin or metallic heat-radiating plate. Also, this invention pertains to the production method of heat conducting electric insulating sheet thereof.

#### [Conventional Technology and Problems to be Solved by this Invention]

Conventionally, heat-generating electronic parts, such as power transistor, thyristor, rectifier, transistor, etc. generate heat when used. Therefore, heat from these heat-generating parts is released using a heat-discharge fin or metallic heat-radiating plate. In this case, a heat-conducting electric insulating body shaped as a sheet is placed between these parts.

The most commonly used heat-conductive electric insulating sheet is prepared by molding a silicone rubber composition containing a heat-conductive inorganic filler, such as quartz, alumina, boron nitride, etc. into a sheet and vulcanizing the sheet.

Moreover, in order to increase the mechanical strength of a heat-conductive electric insulating sheet, a mesh-shaped insulator is often used. Example is a heat-conductive electric insulating sheet having a silicone rubber layer on one side or both sides of

/66

mesh-shaped insulator. As a material of mesh-shaped insulator, glass cloth is most commonly used for its excellent insulating property, strength, and low price. To laminate a silicone rubber layer on the mesh-shaped insulator which is typically a glass cloth, a mesh-shaped insulator is continuously supplied to a calendar roller, on which a silicone rubber composition gradually discharged (hereafter, called as calendar process method), or a silicone rubber composition dissolved with a solvent, etc. is coated on the mesh-shaped insulator (hereafter, called as a coating method).

However, as the abovementioned calendar process method creates a stress, such as pulling and tearing, to the mesh-shaped insulator during the process, the problems associated with broken mesh-shaped insulator tend to occur. On the other hand, the coating method causes the melted silicone rubber composition liquid to elute out from the mesh of the mesh-shaped insulator, thereby resulting in low workability.

Therefore, as a new method capable of solving the problems of these calendar process method and coating method, after a mesh-shaped insulator is soaked in a filling-processing agent solution and pressed beforehand, a silicone rubber layer is formed on this filling-processed mesh-shaped insulator face using the abovementioned calendar process method or coating method. In this case, as a filling-processing agent, a material which has an insulating property, heat conductivity, and excellent adhesiveness to the

silicone rubber layer is suitably used, where normally, the material mainly consists of a silicone rubber and heat conductive inorganic filling agent which are same kinds as the silicone rubber layer raw materials.

However, the heat conductivities of heat-conductive electric insulating sheets obtained by both methods described above are not sufficient. Therefore, a heat-conductive electric insulating sheet having improved heat conductivity and its production method need to be developed.

#### [Method and Operation for Solving the Problems]

The developers of this invention investigated a method for producing a highly heat-conductive electric insulating sheet and discovered that, when the heat conductive inorganic filling agent of silicone rubber filling processing agent used for filling-processing a mesh-shaped electric insulator was different from the heat conducting inorganic filler material of the silicone rubber layer laminated on one face or both faces of a filling-processed mesh-shaped electric insulator, the heat resistance became lower than the case when the same material is used for both heat conducting inorganic filler materials. Thus, a high heat conductivity could be obtained.

Furthermore, in this case, by simultaneously vulcanizing the unvulcanized mesh-shaped electric insulator filling-processed with a silicone rubber filling-processing agent containing a heat conducting

inorganic filler material and the abovementioned silicone rubber layer containing a heat conducting inorganic filler material laminated on one face or both faces of the filling-processed mesh-shaped electric insulator, adhesiveness could be improved between the abovementioned filling-processed mesh-shaped electric insulator and silicone rubber layer. Hence, this invention was completed.

Therefore, this invention provides a heat conducting electric insulating sheet comprising a silicone rubber layers containing a heat conducting inorganic filler material formed on one face or both faces of a mesh-shaped electric insulator filling-processed with a silicone rubber filling processing agent containing a heat conducting inorganic filler material which is different from the heat conducting inorganic filler material of the silicone rubber layers.

Furthermore, this invention provides a production method of heat conducting electric insulating sheet comprising a step of applying filling processing to a mesh-shaped electric insulator with a silicone rubber filling processing agent containing a heat conducting inorganic filler material, a step of forming a silicone rubber layer containing a heat conducting inorganic filler material different from the above on one face or both faces of an unvulcanized mesh-shaped electric insulator filling layer, and a step of concurrently vulcanizing the mesh-shaped electric insulator filling layer and the silicone rubber layer.

Hereafter, this invention is further explained in detail.

As shown in Figs. 1 and 2, the heat conductive electric insulation sheet 1 of this invention is prepared by forming a silicone rubber layer 4 containing a heat conducting inorganic filler material, on one face (Fig. 1) or both faces (Fig. 2) of mesh-shaped electric insulator 3 filling-processed with a silicone rubber filling-processing material 2 containing a heat conducting inorganic filler material which is different from the filler material included in the silicone rubber layer 4.

The mesh-shaped electric insulator can be made of a material having an electric insulation property, such as glass cloth, various kinds of cloths consisting of polymers, etc., where a glass cloth /67 is particularly preferred for its strength.

Furthermore, to prepare an electric insulator having a mesh-shaped structure using the abovementioned electric insulation material, the mesh space and thickness can be adjusted corresponding to the purpose of the producing device. However, the thickness of mesh-shaped electric insulator should be 0.2 mm or less. If the thickness exceeds 0.2 mm, the heat conductivity may worsen.

As the silicone rubber substance used as a silicone rubber layer and as the silicone rubber filling-processing material for filling-processing the electric insulator, any material may be used as long as it is vulcanizable, and is selectable corresponding to the vulcanizing method. For example, when vulcanizing using an organic



peroxide, dimethyl polysiloxane or dimethyl polysiloxane containing a vinyl radical is used. When vulcanization is conducted using dimethyl hydro diene polysiloxane containing a SiH radical as a bridging agent, and a white gold compound as a catalyst, dimethyl polysiloxane having at least two vinyl radicals is preferably used.

Furthermore, as the heat conducting inorganic filler material used as the filling-processing material of electric insulator and silicone rubber layer, inorganic powder having excellent heat conductivity is preferably used. Practical examples are alumina, magnesium oxide, zinc oxide, silicone carbide, aluminum nitrate, boron nitrate, black lead, quartz, etc. which can be used individually or mixed. Quartz, alumina, boron nitrate, etc. are particularly preferably used considering the price and capacity.

Also, the composition ratio of heat conducting inorganic filler material is determined corresponding to the filling-processing material and silicone rubber layer, wherein the preferred composition ratio is different depending on the kind of heat conductive inorganic filling material. The preferable composition ratio of each heat conducting inorganic filler material per 100 parts (weight parts, hereafter designates the same) of silicone rubber substance is 300 - 1200 parts in the case of quartz, alumina, and aluminum nitride; and 100 - 500 parts in the case of boron nitride. If the composition ratio of heat conducting inorganic filler material is less than the abovementioned range, heat conductivity may become insufficient. On

the other hand, an excessive amount lowers the mechanical strength and electric insulation property of the silicone rubber mold, also lowering the rubber elasticity to cause insufficient contact with the heat releasing material of the heat discharging electronic part, which may decrease the heat conductivity effect.

Moreover, as other components, specific amounts of vulcanizing agent or crosslinking agent and reaction catalyst are added to the silicone rubber composition for forming the silicone rubber layer. In addition, if necessary, a reinforcement filler such as silica, process helper, flame retardant, hardening control agent, adhesion enhancer, coloring prevention agent, etc. may be added.

The heat conductive electric insulation sheet of this invention comprises two different kinds of heat conductive inorganic filling-processing materials, one for the first heat conducting inorganic filler material for the silicone rubber filling processing agent applied for filling- processing the mesh-shaped electric insulator and the other for the second heat conducting inorganic filler material for the silicone rubber layer.

In this case, at least two kinds of filling-processing materials must be used for the first and second applications. That is, if only one kind of material is used as the first filling-processing material, and plural materials are used as the second filling-processing material, said one kind of material must be different from any of the plural materials of the second filling-processing material

(the same is true for the case when one kind of material is used as the second filling-processing material, and plural kinds are used as the first filling-processing material.) Furthermore, if both the first and second filling-processing materials consist of plural materials, every material in one group is different from the material in the second group.

The granular diameters and composition amounts of the first and second filling materials may be different or identical.

Furthermore, when a silicone rubber layer is provided on both sides of the filling-processed electric insulator as shown in Fig. 2, the filling materials in both layers may be identical or different. Moreover, the granular diameters, composition amounts, and also silicone rubber compositions of the first and second filling materials may be different or identical. However, considering the productivity, an identical silicone rubber composition is preferably used for forming both silicone rubber layers.

In addition, the silicone rubber component in the filling-processing material of the electric insulator and the silicone rubber component in the silicone rubber layer may be the same or different. However, it is preferably the same material considering the adhesiveness between the filling-processed electric insulator and silicone rubber layer.

When manufacturing the heat conducting electric insulating /68 sheet, after filling-processing is applied to the mesh-shaped electric insulator using a silicone rubber filling processing agent containing a heat conducting inorganic filler material, a silicone rubber layer containing a heat conducting inorganic filler material which is different from the abovementioned material is applied on one side or both sides of the unvulcanized mesh-shaped electric insulator filling-processing layers. Then, the filling-processing layer of the mesh-shaped electric insulator and silicone rubber layer are preferably simultaneously vulcanized.

For filling-processing the mesh-shaped electric insulator, as in the case of regular technique, the filling-processing material is dissolved in an organic solvent (e.g., toluene, xylene, acetic acid ethyl, trichloroethylene, tetrachloroethylene, etc.), and the mesh-shaped electric insulator is soaked in this processing liquid and press-adhered.

Moreover, to laminate a silicone rubber layer, the regular method, such as the abovementioned coating method, calendar processing method, etc., may selected according to the type of sheet, etc. When the silicone rubber layer is laminated using a coating method, the silicone composition is dissolved using an organic solvent such as toluene in the same manner as described with the filling-processing method, so as to prepare a coating solution of appropriate concentration.

As described above, this invention uses mutually different heat conducting inorganic filler materials for the electric insulator filling-processing layer and silicone rubber layer. However, in this case, it is economically advantageous if the expensive boron nitride is used as the filling-processing layer, and inexpensive alumina is used for the silicone rubber layer. Furthermore, it is more advantageous if the filling material of the silicone rubber layer is selected according to the laminating method. The expensive boron nitride having excellent heat conductivity causes molecular structure changes when being exposed to the roller-kneading process and may lower its heat conductivity, and therefore, it is preferably used with a coating method. On the other hand, alumina, etc. which are inexpensive and have relatively excellent heat conductivity can be used for both the calendaring and coating methods.

In the case of production method based on this invention, after providing filling-processing to the mesh-shaped electric insulator, the unvulcanized filling-processing material of the silicone rubber is laminated to the mesh-shaped electric insulator. Then, these layers are simultaneously vulcanized. In this case, although it depends on the kinds of silicone rubber component and vulcanizing agent, the preferable vulcanizing condition is the heat process at 120 - 200°C for 5 - 30 minutes.

#### [Effect of this Invention]

As described above, the heat conducting electric insulating sheet of this invention has high heat conductivity and can be widely utilized (e.g., being placed between a heat-generating electronic part and heat-radiating fin/metallic heat releasing plate). Furthermore, with the production method of this invention, the silicone rubber layer is strongly adhered to the surface of the filling-processed mesh-shaped electric insulator. Therefore, the abovementioned highly heat conductive electric insulation sheet can be efficiently, economically, and advantageously produced.

Hereafter, the operational examples and comparison examples are described so as to practically explain this invention. However, note that this invention is not limited to the following examples.

Also, note that parts used in the examples denote weight parts.

#### [Operational Examples, Comparison Examples]

Silicone rubber consisting of 100 parts of rubber-like dimethyl polysiloxane containing 0.05 mol% of vinyl radicals and 2.0 parts of 2,4-dichlorobenzoyl peroxide used as a vulcanizing agent, boron nitride, alumina, aluminum nitride, and quartz were used to prepare the compositions I - V shown in Table 1.

Table 1

Composition (Parts)	Composition				
	I	II	III	IV	V
Silicone rubber	100	100	100	100	100
Boron nitride	150	-	-	-	100
Alumina	-	1000	600	600	-
Aluminum nitride	-	-	200	-	100
Quartz	-	-	-	300	-

Next, 100 parts of each composition shown in Table 1 were dissolved in 100 parts of toluene to prepare processing liquids and used to filling-process a glass cloth using the method described below. Then, a coating or calendar-rolling method is used to gradually extruding the material into a sheet shape so as to form a silicone rubber layer on both sides of the filling-processing layer of the glass cloth. Thus, heat conducting electric insulating sheets were prepared.

/69

#### <Filling-processing Method>

A 0.1 mm thick glass cloth was immersed in a processing liquid as shown in Table 2 and press-adhered using two rollers and dried at 70°C for 10 min. to remove the solvent so as to perform unvulcanized filling-processing. The filling processing amount was 55 g/m<sup>3</sup>.

#### <Coating Method>

The processing liquid was coated over one side of the unvulcanized glass cloth filling-processed layer as shown in Table 2 using a bar coater. Then, the solvent was removed by providing 60°C hot air using an infrared ray dryer. Next, the other face of the

filling-processed layer was coated to prepare a silicone rubber layer on both sides of the glass cloth filling-processed layer.

This material was vulcanized at 170°C for 15 minutes to prepare a heat conductive silicone rubber sheet.

#### <Gradual Extrusion to Form a Sheet Using a Calendar Roller>

The compositions shown in Table 1 were discharged on one surface of the unvulcanized glass cloth filling-processed layer using three calendaring rollers.

Next, the other surface of the filling-processed layer was coated in the same manner so that the silicone rubber layer could be formed on both sides of the glass cloth filling-processed layer.

The prepared layer was vulcanized at 170°C for 15 minutes to prepare a heat conductive silicone rubber sheet.

The thickness and heat resistance of obtained heat conductive silicone rubber sheet and the adhesiveness between the glass cloth and silicone rubber layer were measured. Note that heat resistance and adhesiveness were measured using the following method.

#### <Heat Resistance Measurement Method>

A measuring sheet was mounted between a power transistor (2SD217, TO-3 type, Nihon Denki) and heat-radiator (YWA-L, 120 type, OS) and fixed with 5 Kg torque. Then, a DC current 4A, 7 V, was impressed to this device for 20 minutes. Next, when the temperature between the heat-radiator and transistor reached its balanced state, the temperature gap of both parts was measured, and the heat



resistance value ( $^{\circ}\text{C}/\text{W}$ ) was obtained from the impressed power consumption.

<Adhesiveness Measuring Method for the Glass Cloth and Silicone Rubber Layer>

After vulcanization, the glass cloth part of the vulcanized heat conductive silicone rubber sheet and silicone rubber layer part were manually pulled apart so as to examine the adhesiveness strength. The result was rated as "unsatisfactory" when both parts were easily separated when pulled apart, and the rest of the cases were rated as "satisfactory". The test results are shown in Table 2.

Table 2

	絶縁体の組成			熱伝導性シリコンゴムシートの物性		
	目止の用組成物	コーティング用組成物	カレンダー分注用組成物	シートの厚み (mm)	熱抵抗 ( $^{\circ}\text{C}/\text{W}$ )	ガラスクロスとシリコンゴム層との接着性
実施例 1	I	II	—	0.44	0.90	良好
2	I	—	II	0.45	0.85	“
3	I	—	III	0.44	0.90	“
4	I	—	IV	0.44	0.95	“
5	II	I	—	0.45	0.45	“
6	II	V	—	0.46	0.80	“
7	V	—	II	0.45	0.90	“
8	V	—	IV	0.45	0.95	“
比較例 1	II	II	—	0.45	1.20	“
2	II	—	II	0.46	1.15	“
3*	I	II	—	0.44	0.90	やや不良

Comparison example 3\*: After performing filling-processing using composition I, the filling-processing material was vulcanized at  $170^{\circ}\text{C}$  for 10 minutes, to which the composition II was coated and vulcanized.

Key for Table 2:

	Processing liquid composition			Physical characteristics of heat conductive silicone rubber sheet		
	Filling-processing composition	Coating composition	Calendering extrusion composition	Sheet thickness	Heat resistance	Adhesiveness between the glass cloth and silicone rubber layer
Operational example						Satisfactory
Comparison example 1						Unsatisfactory
2						
3						

#### 4. Simple Explanation of the Figures

/70

Figs. 1 and 2 are cross-sectional diagrams showing the heat conductive electric insulating sheets based on the operational examples of this invention.

Figure 1

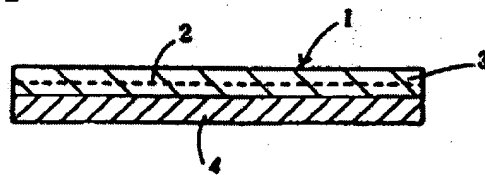


Figure 2

